

BIOSENSOR AND MANUFACTURE THEREOF

Publication number: JP9166571 (A)

Publication date: 1997-06-24

Inventor(s): NAGATA RYOHEI; MUNAKATA HIDEAKI

Applicant(s): DAINIPPON PRINTING CO LTD

Classification:

- international: **G01N27/327; G01N27/416; G01N27/327; G01N27/416;** (IPC1-7): G01N27/327; G01N27/416

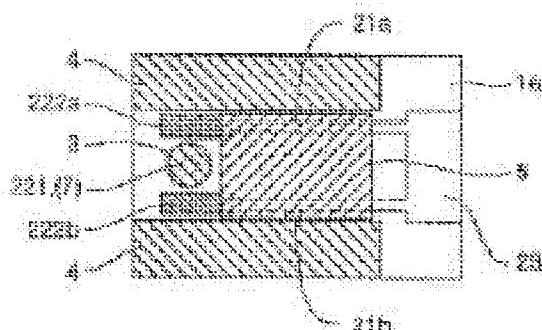
- European:

Application number: JP19950346981 19951214

Priority number(s): JP19950346981 19951214

Abstract of JP 9166571 (A)

PROBLEM TO BE SOLVED: To make a biosensor easily measurable to a small quantity of sample by forming such structure that an electrode formed on one face of an insulating base plate and a connecting terminal formed on the other face are made conductive in the front and rear of the plate through one or more provided in the plate, and separating the electrode and the connecting terminal from each other. **SOLUTION:** An electrode 22 provided with a reaction layer 3 containing organic substance such as enzyme becomes a working electrode. The electrode 22 has electrode shape equal to the hole shape of an opening part of a through hole 7, and is made conductive in the front and rear of an insulating base plate 1a through the through hole 7 and conductive to a connecting terminal 231 for the working electrode through a lead 21 on the outer surface side of the plate 1a.; A counter electrode provided on the same face side as the reaction layer 3 is composed of two pairs of electrodes 222a, 222b, and formed in such a way as to hold the working electrode 221 from both sides. Two pairs of electrodes 222a, 222b for the counter electrode are respectively formed on one ends of leads 21a, 21b. The other ends of these leads are connected to form a connecting terminal for the counter electrode, and an exposure unnecessary part is covered with an insulating layer 5.



Data supplied from the **esp@cenet** database — Worldwide

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-166571

(43)公開日 平成9年(1997)6月24日

(51)Int.Cl.⁶
G 0 1 N 27/327
27/416

識別記号 庁内整理番号

F I
G 0 1 N 27/30
27/46

技術表示箇所
3 5 3 P
3 5 3
3 3 8

審査請求 未請求 請求項の数16 F D (全10頁)

(21)出願番号 特願平7-346981

(22)出願日 平成7年(1995)12月14日

(71)出願人 000002897

大日本印刷株式会社

東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号

(72)発明者 永田 良平

東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号

大日本印刷株式会社内

(72)発明者 宗像 秀明

東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号

大日本印刷株式会社内

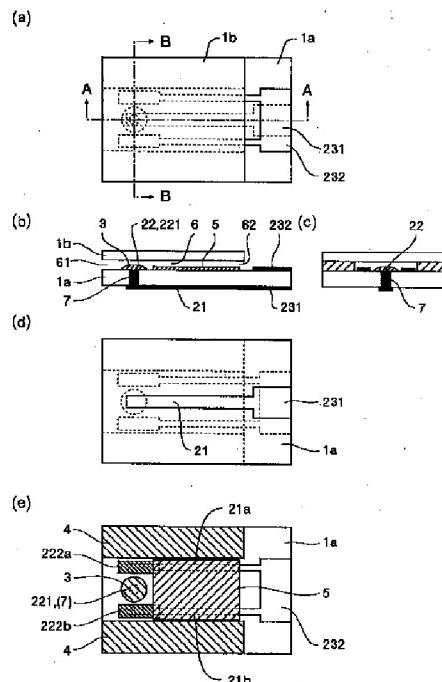
(74)代理人 弁理士 小西 淳美

(54)【発明の名称】 バイオセンサおよびその製造方法

(57)【要約】

【課題】 小量の液体試料で正確且つ容易に定量でき、しかも液濡れにも耐えて使い易くて安価なものにする。

【解決手段】 バイオセンサの一つは、2枚の絶縁性基板をスペーサで空間部を設けて積層して内面側に電極系と反応層を有し、基板に開けられていた貫通孔で表裏を導通させて、電極とその接続端子が基板の両面に分離させる。さらに、片面を背面フィルムを仮貼りして貫通孔に蓋をして反対側から内部にカーボンペースト等の電極形成物質を詰めた後、フィルムを剥がせば、孔の開口部から基板面と同一面で孔形状に等しい電極が得られ、これを作極とし、その接続端子は反対面側にする。対極とその接続端子は作用極側に設け、作用極用と対極用の接続端子を基板の表裏両面に分離させる。スペーサは基板に印刷又は塗布で形成する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも絶縁性基板と、該基板に設けられた電極系と、2枚の絶縁性基板間に形成された空間部に面する反応層とを有するバイオセンサにおいて、絶縁性基板の一方の面に形成された電極と、他方の面に形成された接続端子とが、該絶縁性基板に設けられていた1以上の貫通孔を介して表裏で導通していることを特徴とするバイオセンサ。

【請求項2】 貫通孔がその内部に、電極系を形成する、電極形成物質又は／及びリード形成物質を有することで表裏で導通していることを特徴とする請求項1記載のバイオセンサ。

【請求項3】 貫通孔内部に有する電極形成物質が少なくとも電極形成面側の貫通孔の孔径内側の全領域から露出し、該開口部形状をした電極を成すことを特徴とする請求項2記載のバイオセンサ。

【請求項4】 接続端子と表裏で接続する電極が、該電極上に反応層が形成された作用極であることを特徴とする請求項3記載のバイオセンサ。

【請求項5】 一枚の絶縁性基板の片面に作用極及び対極が形成され、対極が、作用極を両側から挟む様に2対の電極からなり、これら電極と同一面側に対極用の接続端子が形成され、接続端子が作用極用と対極用とで一枚の絶縁性基板の表裏に分離されていることを特徴とする請求項4記載のバイオセンサ。

【請求項6】 接続端子と表裏で接続する電極が、対極であることを特徴とする請求項1、2又は3記載のバイオセンサ。

【請求項7】 貫通孔の表裏の導通が、その内部に有するリード形成物質によって成されていることを特徴とする請求項6記載のバイオセンサ。

【請求項8】 一枚の絶縁性基板の片面に作用極及び対極が形成され、請求項4による作用極に対して、請求項6又は7による対極が、前記作用極を両側から挟む様に形成された2対の電極からなり、作用極及び対極の電極と、これら接続端子とが、一枚の絶縁性基板の表裏に分離されていることを特徴とするバイオセンサ。

【請求項9】 請求項1～8のいずれか1項に記載の絶縁性基板と他の絶縁性基板とが、電極形成面を内側にして、少なくとも片方の絶縁性基板に印刷又は塗布により形成されたスペーサにより、反応層が面する空間部を残す様に接着、積層されていることを特徴とするバイオセンサ。

【請求項10】 少なくとも絶縁性基板と、該基板上に設けられた電極系と、2枚の絶縁性基板間に形成された空間部に面する反応層とを有するバイオセンサで、一枚の絶縁性基板の一方の面に形成された電極と、他方の面に形成された接続端子とが、該絶縁性基板に設けられていた1以上の貫通孔を介して表裏で導通しているバイオセンサの製造方法であって、

1以上の貫通孔を有する絶縁性基板を用意し、その一方の面に背面フィルムを貼り合わせて前記貫通孔を覆った後、他方の面から前記貫通孔を充填する様にして電極形成用の導電性ペーストで所定の導体パターンを印刷した後、背面フィルムを剥離して、貫通孔内部の電極形成物質が少なくとも電極形成面側の貫通孔の孔径内側の全領域から露出し、該開口部形状をした電極とともに、絶縁性基板の一方の面の電極と他方の面の接続端子とを、表裏で導通させることを特徴とするバイオセンサの製造方法。

【請求項11】 貫通孔の開口部形状をした電極上に反応層を形成して作用極とし、作用極を、絶縁性基板の他方の面の接続端子と表裏で導通する電極として形成することを特徴とする請求項10記載のバイオセンサの製造方法。

【請求項12】 少なくとも絶縁性基板と、該基板上に設けられた電極系と、反応層とを有するバイオセンサで、絶縁性基板の一方の面に形成された電極と、他方の面に形成された接続端子とが、該絶縁性基板に設けられていた1以上の貫通孔を介して表裏で導通しているバイオセンサの製造方法であって、

1以上の貫通孔を有する絶縁性基板を用意し、その一方の面に背面フィルムを貼り合わせて前記貫通孔を覆った後、他方の面から前記貫通孔の内部に入る様にしてリード形成用の導電性ペーストで所定のリードパターンを印刷した後、背面フィルムを剥離して、次いで、露出した絶縁性基板の面側から再度、前記貫通孔の内部に既に入った導電性ペーストと接続する様にリード形成用の導電性ペーストで所定のリードパターンを印刷して、貫通孔をリード形成物質により表裏で導通させて、表裏で導通するリードを形成することを特徴とするバイオセンサの製造方法。

【請求項13】 対極を、絶縁性基板の他方の面の接続端子と導通するリードに設けたことを特徴とする請求項12記載のバイオセンサの製造方法。

【請求項14】 一枚の絶縁性基板の片面に、作用極を請求項11の製造方法により形成し、2対からなる対極を前記作用極を両側から挟む様に形成し、且つ該対極用の接続端子は該対極と同一面側に形成し、接続端子を作用極用と対極用とで一枚の絶縁性基板の表裏に分離して形成することを特徴とするバイオセンサの製造方法。

【請求項15】 一枚の絶縁性基板の片面に、作用極を請求項11の製造方法により形成し、2対からなる対極を前記作用極を両側から挟む様に請求項13の製造方法により形成し、作用極及び対極の電極と、これら接続端子とを、一枚の絶縁性基板の表裏に分離して形成することを特徴とするバイオセンサの製造方法。

【請求項16】 スペーサを、少なくとも片方の絶縁性基板に印刷又は塗布により形成し、2枚の絶縁性基板を反応層が面する空間部を残す様に、スペーサにより接

着、積層することを特徴とする請求項10～15のいずれか1項に記載のバイオセンサの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、例えば血液中のグルコース等と、液体試料中の特定成分を迅速、容易に、且つ正確に定量できるバイオセンサに関し、さらに詳しくは少量の試料で容易に測定できる使い易くて安価なバイオセンサの電極構造と、その製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、試料液中の特定成分の定量において、酵素など生体関連物質の高い分子識別能力を利用して種々の被測定物質の存在量を測定するバイオセンサが知られている。例えば、その中で生体関連物質として酵素を利用した酵素センサとして、グルコースを定量するグルコースセンサが実用化されている。酵素センサは、被測定物質に対して高い基質特異性を有する酵素を高分子膜等の基材に固定化し、酵素に試料中の被測定物質を接触させ、酵素反応によって生じる物質を電気化学的に検知し、定量することができる。

【0003】バイオセンサの用途は各方面にわたり、例えば前記のグルコースセンサの場合、糖尿病患者の血糖値管理や食品加工の工程管理などで商業化されている。また、微生物を利用したバイオセンサ（微生物センサ）も各種実用化されており、河川の水質分析や、工場排水の安全性管理などに利用されている。このようにバイオセンサは、試料液中の特定成分の定量において、医療、食品分析、醸酵管理、環境計測などに、幅広く実用化されている。そして、実用化当初の測定は、装置が大型で時間や費用がかかるという問題もあったが、病院、工場などの施設で利用されることが多く、その優れた分子識別能力により許容できない程ではなかった。しかし、特に個人が健康のチェック、病気の状態、治療の効果を調べるために血液や尿中の特定成分を測定する場合には、そのランニングコストや難解な操作方法のため、利用者には大きな負担となり、より簡易的にその場で測定できる安価なセンサが望まれていた。

【0004】例えば、特公平6-76984号公報で提案されたグルコースセンサ等として使えるバイオセンサは、微量の試料液を上から滴下するだけで短時間に測定できるようにしたものである。同号公報では、樹脂製の円柱基材に埋め込んだ白金電極をその上底面から露出させた電極部に、環状の枠体中にレーヨン紙の保液層、多孔質膜のろ過層、及び酵素を含ませた不織布の反応層を挟み込んだ測定チップを設置した構造のバイオセンサが提案されている。しかし、構造が複雑で、製造工程や構成部品が多く、如何に工夫してもコストが高くなってしまうことは避けられない。また、特公平6-58338号公報はグルコースセンサ等として使えるバイオセンサをディスポーバルタイプとしたものを提案している。

このバイオセンサの構造は、図6～図8に示す如く、樹脂製のシート91aに、導電ペーストで印刷形成したリードの一端を利用して接続端子923とし、また、電極となるリードの他端上に電極物質を印刷形成した上で、接続端子923と電極922及び922aとを露出させる様に絶縁層94を印刷して残りのリードを覆い、さらに電極922及び922a上に酵素を固定した反応層95を形成して下側基板とし、これに反応層95の周囲に空間部96ができる様なスペーサーシート97を介してカバーとなるシート91bを積層し、試料液は先端の導入口98から毛細管現象によって空間部に入り、また空間部内の気体は試料液の導入によって排出口99から押し出される様にした構造であり、微量の試料液と空間部内の気体との交換が円滑に行われるようになしたものである。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記特公平6-58338号公報で提案された様なバイオセンサは、ディスポーバル化され個人利用を容易とするものとなってはいるが、熟練した専属の分析者が使用する場合とは異なり、一般の個人が利用の場合、必ずしも使い易いものではなかった。それは、複数の接続端子が、基板となるシートの同一面に隣接して設けられており、操作を誤って測定する試料液等をセンサの別の場所に付着させてしまい、それが接続端子部分を濡らすと、隣接した接続端子同士が電気的に導通するおそれがあったからである。また、2枚のシートの他に、空間部を形成する様な所定形状に切断等したスペーサーシートを構成部品として必要し、構造に改善の余地があり、コストが高くなってしまうことは避けられなかった。

【0006】

【課題を解決するための手段】そこで本発明のバイオセンサは、少なくとも絶縁性基板と、該基板に設けられた電極系と、2枚の絶縁性基板間に形成された空間部に面する反応層とを有するバイオセンサにおいて、絶縁性基板の一方の面に形成された電極と、他方の面に形成されたその接続端子とが、該絶縁性基板に設けられていた1以上の貫通孔を介して表裏で導通している構造として、電極とその接続端子とを絶縁性基板の表裏両面に分離した。また、本発明の第2の形態では上記貫通孔の導通手段として、貫通孔がその内部に、電極系を形成する電極形成物質又はリード形成物質の何方か一方又は両方を有する構造として表裏導通を行った。

【0007】また、第3の形態では、第2の形態にて、貫通孔内部に有する電極形成物質が少なくとも電極形成面側の貫通孔の孔径内側の全領域から露出し、貫通孔を利用した該開口部形状の電極とし、さらに、第4の形態は該開口部形状の電極を、その電極上に反応層が形成された作用極として、作用極とその接続端子とを表裏で接続した。そして、第5の形態では、第4の形態にて、接

続端子と表裏で接続する作用極とともに、一枚の絶縁性基板の片面に該作用極及び対極が形成され、対極が、作用極を両側から挟む様に2対の電極からなり、これら電極と同一面側に対極用の接続端子が形成され、接続端子を作用極用と対極用とで一枚の絶縁性基板の表裏に分離させた。

【0008】また、本発明のバイオセンサの第6の形態は、貫通孔により接続端子と表裏で接続する電極を、対極とした構造とし、また、第7の形態は、第6の形態にて、貫通孔での表裏の導通を、その内部に有するリード形成物質によって行った。そして、第8の形態では、前記第4の形態による作用極と、上記第6又は第7の形態による対極とを有し、この対極が前記作用極を両側から挟む様に形成した2対の電極からなり、作用極及び対極の電極と、これら接続端子とを、一枚の絶縁性基板の表裏に分離した。また、第9の形態では、上記各種形態において、用いる2枚の絶縁性基板同士を、少なくとも片方の絶縁性基板に印刷又は塗布により形成されたスペーサにより接着、積層して反応層が面する空間部を確保した。

【0009】また、本発明のバイオセンサの製造方法は、少なくとも絶縁性基板と、該基板上に設けられた電極系と、2枚の絶縁性基板間に形成された空間部に面する反応層とを有するバイオセンサで、一枚の絶縁性基板の一方の面に形成された電極と、他方の面に形成された接続端子とが、該絶縁性基板に設けられていた1以上の貫通孔を介して表裏で導通しているバイオセンサを製造するために、1以上の貫通孔を有する絶縁性基板を用意し、その一方の面に背面フィルムを貼り合わせて前記貫通孔を覆った後、他方の面から前記貫通孔を充填する様にして電極形成用の導電性ペーストで所定の導体パターンを印刷した後、背面フィルムを剥離して、貫通孔内部の電極形成物質が少なくとも電極形成面側の貫通孔の孔径内側の全領域から露出し、該開口部形状をした電極とともに、絶縁性基板の一方の面の電極と他方の面の接続端子とを、表裏で導通させる製造方法とした。また、前記第1の形態の本製造方法に対して、第2の形態では、貫通孔の開口部形状をした電極上に反応層を形成して作用極とし、作用極を、絶縁性基板の他方の面の接続端子と表裏で導通する電極として形成した。

【0010】また、本製造方法の第3の形態は、少なくとも絶縁性基板と、該基板上に設けられた電極系と、反応層とを有するバイオセンサで、絶縁性基板の一方の面に形成された電極と、他方の面に形成された接続端子とが、該絶縁性基板に設けられていた1以上の貫通孔を介して表裏で導通しているバイオセンサを製造するために、1以上の貫通孔を有する絶縁性基板を用意し、その一方の面に背面フィルムを貼り合わせて前記貫通孔を覆った後、他方の面から前記貫通孔の内部に入る様にしてリード形成用の導電性ペーストで所定のリードパターン

を印刷した後、背面フィルムを剥離して、次いで、露出した絶縁性基板の面側から再度、前記貫通孔の内部に既に入った導電性ペーストと接続する様にリード形成用の導電性ペーストで所定のリードパターンを印刷して、貫通孔をリード形成物質により表裏で導通させて、表裏で導通するリードを形成する製造方法とした。

【0011】そして、本製造方法の第4の形態は、上記製造方法の第3の形態にて、対極を、絶縁性基板の他方の面の接続端子と導通するリードに設けることとした。

10 また、本製造方法の第5の形態は、一枚の絶縁性基板の片面に、作用極を前記製造方法の第2の形態により形成し、2対からなる対極を前記作用極を両側から挟む様に形成し、且つ該対極用の接続端子は該対極と同一面側に形成し、接続端子を作用極用と対極用とで一枚の絶縁性基板の表裏に分離させて形成した。そして、本製造方法の第6の形態は、一枚の絶縁性基板の片面に、作用極を前記製造方法の第2の形態により形成し、2対からなる対極を前記作用極を両側から挟む様に前記製造方法の第4の形態により形成し、作用極及び対極の電極と、これら接続端子とを、一枚の絶縁性基板の表裏に分離させて形成した。さらに、本製造方法の第7の形態は、上記製造方法の各種形態にて、スペーサを、少なくとも片方の絶縁性基板に印刷又は塗布により形成し、2枚の絶縁性基板をスペーサにより接着、積層して反応層が面する空間部を確保した。

【0012】

【発明の実施の形態】以下、図面を参照しながら本発明のバイオセンサ及びその製造方法について、実施の形態を説明する。図1及び図2は、本発明のバイオセンサの一実施例を示す図であり、図1(a)上方から見た平面図、図1(b)は図1(a)のA-A線での断面図、図1(c)は図1(a)のB-B線での断面図、図1(d)は下方から見た平面図、図1(e)は作用極のある下側の基板を上方から見た平面図、図2は、作用極に貫通孔による導通を利用した下側の基板について、その導体パターンを立体的に示す斜視図である。

【0013】図1及び図2に示す、バイオセンサ10は、2枚の絶縁性基板1a及び1bがスペーサ4を介して反応層3が面する空間部6を残す様に接着、積層された構造であり、積層前の状態で、下側の絶縁性基板1aに、全ての電極系と、反応層及びスペーサが印刷又は塗工により形成されており、これにカバーシートとしての上側の絶縁性基板1bがスペーサにより接着・積層したものである。下側の絶縁性基板1aに形成される電極系は、リード、電極、接続端子、及び絶縁層から構成されている。なお、絶縁層は図面が煩雑となるので説明上図1(e)においてのみ図示した。酵素等の生体関連物質を含む反応層3が設けられた電極22は作用極221となり、該電極は貫通孔7の開口部の孔形状に等しい電極形状をしており、貫通孔を介して絶縁性基板の表裏で導

通しており、該基板の外面側のリード21を経て作用極用の接続端子231に導通している。一方、反応層と同一面側に設けられた対極は2対の直線状の電極222a及び222bからなり、前記作用極221を（覆う反応層3から離れて）両側から挟む様に形成してある。これら2対の対極用電極はそれぞれリード21a及び21bの一端の上に形成され、これらリードの他端が連結して対極用の接続端子232を成し（兼用し）、露出不要部は絶縁層5で覆われている。以上の結果、一枚の絶縁性基板の内面側に作用極及び対極を、そして作用極の接続端子のみをその基板の外面側として、作用極と対極の接続端子を各々一枚の絶縁性基板の両面に設けた構造のバイオセンサとしている。

【0014】また、スペーサ4は反応層を試料液に接触させるための空間部6、導入口61及び排出口62を残す様に、両側に直線状のパターンとして下側の絶縁性基板に形成されたものが使われている。この結果、接続端子がない側の側端面部分に試料液を導入する導入口61がスペーサに両サイドを挟まれて開口し、接続端子側の上側絶縁性基板の側端面部分に空間部の気体を排出する排出口62が開口した構造となっている。

【0015】以上の結果、排出口まで達した試料液がオーバーフローして、不意に接続端子を濡らしたとしても、片側の接続端子のみであり、両接続端子は基板の両面に分離形成されているので、両接続端子間で導通してしまうことを回避できる。

【0016】本発明のバイオセンサは、上述の如く、通常は2枚の絶縁性基板から構成され、少なくとも一つの電極について、貫通孔により、その電極形成面と接続端子形成面とを基板の両面に分離して設けた構造に基本的な特徴がある。そして、この基本的構造によって、試料液が接する側の電極形成面側と、測定装置との導通の為の接続端子側とが、一枚の基板の表裏に分離形成され、接続端子が不意に試料液等によって濡れても、接続端子間で導通するのを防止できる様にするものである。従来のバイオセンサは、2枚構成の絶縁性基板で片方の基板の内面側に作用極及び対極と、その作用極用及び対極用の両方の接続端子の全ての電極系を形成するので、接続端子部分が濡れると、接続端子同士で導通してしまいやすい。しかし、本発明の如く、少なくとも片方の電極の接続端子を他方の面に形成すれば、両接続端子は両面に分離し、たとえ濡れたとしても、両接続端子間での導通は防止できる。その結果、不本意な部分が液濡れしても接続端子部での導通が防げ、不慣れな個人でも使い易いという利点が得られることとなる。また、一枚の絶縁性基板に形成される全ての電極と全ての接続端子とを、両面に分離形成すれば、やはり試料液に接する電極側面と、接続端子側面とが異なるので、液濡れを防止できる。さらに、以上のこととは、全ての電極系を一枚の絶縁性基板に形成する場合に限定されるものではない。対向する2

枚の絶縁性基板の両方に電極系を分けて設ける場合でも、各々の基板について、接続端子は試料液が接する電極側に対して裏面側となり、電極と接続端子との関係において同様のことがいえる。

【0017】本発明のバイオセンサでは、さらに上記貫通孔を巧みに利用して、貫通孔の孔形状を電極形状とするものもある。従来、電極は例えばカーボンペースト等で形成しても、その面積を一定とする為にその不要部を絶縁層で覆い、絶縁層の形成によって電極形状を制御するという手法が採用されることがある。しかし、貫通孔を利用すれば、貫通孔を穿設するサイズで電極形状を制御でき、絶縁層はリード部の絶縁等を目的とすれば良いことになる。したがって、反応層で覆われ面積精度が要求される電極には本構造は適している。

【0018】なお、絶縁性基板、電極系、反応層、スペーサ等の材料及びそれらの形成は、従来公知の材料、方法より用途に合ったものを適宜選択すれば良い。例えば、絶縁性基板には、ポリエチレンテレフタレート（以下、P E T）等からなる樹脂シート等を用いる。電極系には、リード及び接続端子は銀や金等の金属含有の導電性ペーストで、電極はカーボンペーストで、絶縁層は絶縁性ペーストで、各々スクリーン印刷により形成すれば良い。反応層は酵素センサでグルコースセンサとするならば、グルコースオキシダーゼを固定した層とすれば良く、酵素含有インキのスクリーン印刷で、或いは塗液のディスペンサによる塗布で形成する。また、この他、例えば検体試料液の滲み込みを制御する等の層があっても良い。

【0019】次に、貫通孔による表裏の導通手段であるが、電気的接続が得られれば、その手段は特に限定されないが、上記構成材料で、カーボンペーストを利用した電極形成物質、或いは銀ペーストや金ペースト等のリード形成物質を利用して、それが内部に存在し、表裏で導通する様にすれば、電極やリードの形成と同時に貫通孔での導通を達成でき都合がよい。特に、電極形成物質を内部に充填させて、電極面側から貫通孔を見てその孔径の内側の全領域で露出させれば、それを貫通孔の孔径に応じた面積を持つ電極とすることが可能。この最も単純な場合は、貫通孔内部の電極形成物質が、少なくとも電極形成面側の貫通孔の開口部にて、基板表面に連続した平面で孔径内側の全領域から露出している場合である。従って、電極形成物質は貫通孔の内部を完全に充填していることは必ずしも必要ではない。また、リードを貫通孔により表裏で導通させても良く、この場合はリード形成物質を貫通手段として使用すれば、リード形成と同時に表裏導通が行え都合が良い。また、貫通孔の導通手段たる導電物質は貫通孔内部を完全に充填していることはリード部の導通でも必ずしも必要ではない。また、一つの表裏導通路を、或いは電極を形成する貫通孔は、一つに限定されずに複数でも良く、例えば或る部分にまとま

って形成された一群の貫通孔である。

【0020】なお、基板表面に連続した平面の電極露出部とするには、背面フィルムを一時的に貼着した上で裏面側から電極形成物質を埋め込んだ後、背面フィルムを剥離すれば良い。背面フィルムとしては、電極やリードをスクリーン印刷して乾燥、焼成（熱硬化等）する際の耐熱性を考慮して、用いる絶縁性基板と同質の、例えばP E T フィルムに耐熱性のアクリル系粘着剤（例えば紫外線硬化タイプ）を塗布したものが使用できる。背面フィルムの剥離は、焼成に耐え得れば焼成後でも良いが、印刷したもののが崩れなければ乾燥後の剥離でも良い。また、特にリード部で表裏から印刷して表裏接続する場合等、貫通孔孔径とペースト粘度との関係で、印刷後の未乾燥ペーストが貫通孔から流れ出し裏面を濡らしてしまわなければ、背面フィルムは省略することもできる。

【0021】次に、本発明ではスペーサとして、P E T シート等を用い、該シートを介して接着剤で絶縁性基板同士を接着固定しても良いが、空間部を形成すべく予め所定形状にしたシートを要する点で、少なくとも一方の絶縁性基板に（空間部を形成する様なパターンに）印刷又は塗布により形成したものを用いるのが、部品点数削減、低コスト化の点で利点がある。塗布は望ましくは部分的塗布である。但し、全面塗布でも、印刷又は部分的塗布との組み合わせて利用可能である。すなわち、2枚構成の絶縁性基板として片方は電極系等設けずに単なるカバーシートとして、該カバーシート側に感熱接着剤等を全面塗布して、他方基板には空間部の間隙形成に足りうる凸部を印刷形成して、これらを凸部で接着、積層する形態では利用可能となる。

【0022】印刷又は部分的塗布なるスペーサ形成手段は、用いる材料によって適宜選択すれば良い。印刷は厚く形成できる点でスクリーン印刷が好適だが、該印刷が不向きな材料は、例えば、ホットメルト等のアプリケータや、塗布用の版形状によって、部分的に塗布する。製造は通常、多面付けで行うが、隣接するセンサに連なる連続ストライプ状、或いは隣接するセンサ間で不連続な間欠的ストライプ状等すれば、印刷が不向きな材料の塗布形成も比較的容易にできる。印刷又は部分的塗布によるスペーサ材料としては、例えば、熱活性熱硬化型粘着剤等のホットメルト型粘着剤、或いは熱活性熱硬化型接着剤等のホットメルト型接着剤等のホットメルト接着剤等が使用でき、これら樹脂成分としては例えばアクリル系樹脂、シリコーンエラストマー等が用いられる。なお、これらは前記全面塗布にも適用できる。また、印刷適性、塗工適性等の向上に適宜、充填剤等の添加剤を加える。そして、2枚の絶縁性基板を積層して、熱、及び必要に応じて適度な圧力を加えれば、形成されたスペーサが熱で活性化して、両絶縁性基板を接着、固定する。また、粘着剤、或いは接着剤の一回の印刷又は部分的塗布で、絶縁性基板間を所望の間隔（電極系の厚み分を空

間部で収容でき反応層まで試料液を導き接触させ得る間隔であれば良く、通常は50～300μm程度）にできる程の厚みに形成できないときは、複数回の印刷又は部分的塗布を重ねて行っても良い。この場合、同一材料とせず、厚み機能を受け持つ層を、接着機能を受け持つ層が挟む様に形成しても良い。厚み機能を受け持つ層には、熱で接着力が発現する機能は不要であり、厚盛りができるスクリーン印刷インキ等であれば良く、例えば、厚盛り可能な絶縁性ペースト等でも良い。なお、反応層形成後に、スペーサを形成する場合、スペーサから測定妨害物質が仮に出たとしても反応層を保護できる様に保護層で覆っておいても良い。例えば、グルコースオキシダーゼを含有する反応層の場合、リン脂質を含有するインキ又は塗液を印刷又は塗布しておく。

【0023】次に、本発明のバイオセンサの製造方法の一形態を図3により説明する。同図は、図1及び図2に示した作用極とその接続端子とを表裏に分離形成したセンサを製造する一例である。先ず、図3（a）〔以下、「図3」は省略〕の如く、一枚の絶縁性基板に貫通孔7を穿設する。次いで、センサ組立時に内面側となる面に背面フィルム8を貼着し（図面では紙面向こう側）

（b）、次いで貫通孔7を充填する様に電極形成材料を外側面から（紙面手前側）印刷して作用極用の電極22を形成し、背面フィルムは印刷後、剥離する（c）。さらに作用極用の接続端子231も兼用するリード21を形成する（d）。次いで、絶縁性基板を裏返しにして内側面に、対極用の接続端子232も兼用するリード21a及び21bを形成する（e）。なお、（e）では作用極用の電極22が貫通孔7の形状になって貫通孔があつた部分から露出していることが分かる。次いで、対極用の電極222a及び222bを形成し（f）、次に絶縁層5を形成して、最終的な対極（露出）形状として電極系を形成する（g）。次に、貫通孔部分に形成され作用極用の電極22上に反応層3を形成し（h）、スペーサ4を形成する（i）。そして、カバーシートとして切欠き部11を有する絶縁性基板1cを用意し（j）、これを重ね合わせて熱圧を加えスペーサにて両基板を接着・固定し、バイオセンサを得る（k）。なお、切欠き部11の形状は意識的に非対称として、センサを測定装置にセットする際の誤接続（作用極と対極）防止対策の一つとしても良く、目視判断で、或いは測定装置側で構造的に異形状を認識することも可能である。

【0024】次に、本発明のバイオセンサの他の形態として、対極もその接続端子と表裏で分離形成した構造のセンサを図4に示す。図4（a）は絶縁性基板の内側面を、同図（b）は外側面を、同図（c）は同図（a）でのA-A線及びB-B線での断面図を示す。対極は、そのリードの中間で貫通孔により表裏で導通し、リードは両面に設けられている。対極222aはリード21e、貫通孔7b、リード21cを通じて接続端子232aに

導通する。対極222bはリード21f、貫通孔7c、リード21dを通じて接続端子232bに導通する。この様にすると、作用極及び対極は絶縁性基板の内面側に、それらの接続端子は全て外側に設けることができる。そして、排出口から試料液がオーバーフローしても、接続端子は逆の裏面側であるために、接続端子同士による導通は効果的に防げる。また、図4では、貫通孔による表裏導通をリード部で行ったものである。なお、絶縁層は図面が煩雑となるため説明上同図(c)のB-B線断面図でのみ図示した。

【0025】図5は、図4の様に、対極もその接続端子と表裏分離形成し、それをリード部で導通させる構造のセンサの製造方法の一形態を示す製造工程の説明図である。但し図5では、対極形状について、円形の作用極及び反応層の周囲を一部が欠損した環状に一定の距離を隔てて囲う様な形状としてある。図5の工程説明図では、先ず、図5(a)〔以下、「図5」は省略〕の如く、一枚の絶縁性基板に貫通孔7a、7b及び7cを穿設後、内側面に背面フィルム8を貼着し(図面では紙面向こう側)(b)、貫通孔7aを充填する様に作用極用の電極22を形成し(c)、さらに作用極用の接続端子231を兼用するリード21、対極用の接続端子232aを兼用するリード21c、同じく対極用の接続端子232bを兼用するリード21dを形成し、背面フィルムは剥離する(d)。次いで、絶縁性基板を裏返しにして内側面に、さらに作用極まで延びるリード21e及び21fを各々貫通孔7b及び7cに接続して形成する(e)。次いで、対極用の電極222c及び222dを形成後(f)、絶縁層5を形成して電極系を形成する(g)。次に、作用極用の電極22上に反応層3を形成後(h)、スペーサ4を形成する(i)。そして、カバーシートとなる絶縁性基板1dを用意し(j)、これを重ね合わせて熱圧を加えスペーサにて両基板を接着・固定し、バイオセンサを得る(k)。

【0026】

【実施例】次に、一実施例により本発明を説明する。本実施例は、図1及び図2に示す構造のバイオセンサを製造するものであり、作用極とその接続端子とが絶縁性基板の両面に分離して設けた構造が得られる。先ず、絶縁性基板として、作用極とする為の直径1mmの貫通孔を一つ穿設した250μm厚のPETシートを用意する。次いで、電極を内側にしてバイオセンサを組立時の内面側に、紫外線硬化型アクリル系粘着剤を片面に施した250μm厚のPETシートを背面フィルムとして貼り付ける。そして、組立時の外側から貫通孔より少し大きめにしてその内部を完全に充填する様に、カーボンペーストをスクリーン印刷後、乾燥して背面フィルムを剥離した後(粘着剤は背面フィルムに付いて剥離する)、焼成して作用極を形成する。次に、(外側に)銀ペーストをスクリーン印刷後、焼成して、作用極用のリード及び

接続端子を形成する。同様にして内面側にも銀ペーストをスクリーン印刷後、焼成して、対極用のリード及び接続端子を形成後、カーボンペーストをスクリーン印刷後、焼成して対極用の電極を形成する。さらに、内面側に絶縁性ペーストをスクリーン印刷後、焼成して絶縁層を形成して、一枚の絶縁性基板に作用極及び対極となる電極系を形成する。そして、貫通孔から露出した電極部分に、グルコースオキシダーゼとフェロセンカルボン酸の混合インキをスクリーン印刷後、乾燥し反応層を形成する。さらに、熱活性熱硬化型粘着剤からなるインキをスクリーン印刷、乾燥してスペーサを形成する。次いで、接続端子部に切れ目を有するカバーシートとなる他の絶縁性基板を重ね合わせて、熱圧によりスペーサで接着、積層して固定してバイオセンサとする。

【0027】

【発明の効果】本発明によれば、バイオセンサを少量の試料で容易に測定でき、且つ使い易くて安価なディスポーザブルタイプのものとできる。貫通孔による表裏導通で電極とその接続端子とを基板の表裏に分離形成でき、接続端子が不意に濡れるのを防げ、使い易いセンサとなる。貫通孔での導通は電極やリードの形成物質とすれば、特別な材料は不要である。また、貫通孔に電極形成物質を詰めて開口部から露出させれば、貫通孔形状で面積精度を出した電極となり、絶縁層による面積制御が必要の作用極に適用できる。そして、一枚の絶縁性基板に作用極の接続端子はその裏面側に、対極及びその接続端子は作用極側に形成すれば、両極の接続端子を両面に分離形成でき、たとえ電極面側の接続端子が排出口からオーバーフローした試料液で濡れたとしても、両接続端子間で導通することを防げる。また、対極についても、リード部で貫通孔を介して表裏導通させ、対極の接続端子も裏面側に形成すれば、対極の接続端子も濡れることを防げる。さらに、スペーサを印刷又は部分的塗布のスペーサとすれば、スペーサシートが不要で構成部品数を減らせ、安価なセンサにできる。また、本発明の製造方法によれば、上記バイオセンサを効率的に製造できる上、特に、貫通孔内部に入れた電極形成物質により、絶縁性基板の表面に連続した平滑面を持つ電極が形成でき、電極面積精度が要求される作用極用に適した電極が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のバイオセンサの一実施例の構造を示す説明図(作用極のその接続端子とが貫通孔で表裏接続)。(a)は上方から見た平面図、(b)は(a)のA-A線での断面図、(c)は(a)のB-B線での断面図、(d)は下方から見た平面図、(e)は作用極のある下側の基板を上方から見た平面図。

【図2】作用極に貫通孔による導通を利用した下側の基板について、その導体パターンを立体的に示す斜視図である。

【図3】本発明のバイオセンサの製造方法の一実施例による工程説明図。(a)貫通孔の穿設、(b)背面フィルム貼着、(c)貫通孔を電極物質で穴埋めと背面フィルム剥離、(d)作用極のリード形成、(e)対極のリード形成、(f)対極の電極形成、(g)絶縁層形成、(h)反応層形成、(i)スペーサ形成、(j)上側の絶縁性基板を用意、(k)上下基板の積層・接着。

【図4】本発明のバイオセンサの他の実施例の構造を示す説明図(作用極及び対極と、それらの接続端子とが全て貫通孔で表裏接続)。

【図5】本発明の製造方法の他の実施例として、図4と同様な表裏接続のバイオセンサを製造する工程説明図。

(a)貫通孔の穿設、(b)背面フィルム貼着、(c)作用極用貫通孔の電極物質での穴埋め、(d)対極用貫通孔のリード物質での穴埋めと対極用外面側リードと作用極用リード形成と背面フィルム剥離、(e)対極の内面側リード形成、(f)対極の電極形成、(g)絶縁層形成、(h)反応層形成、(i)スペーサ形成、(j)上側の絶縁性基板を用意、(k)上下基板の積層・接着。

【図6】従来のバイオセンサの構造の一例を示す分解斜視図。

【図7】図6の従来のバイオセンサの外観図。

【図8】図6の従来のバイオセンサのA-A線(図7)での断面図。

【符号の説明】

- 1, 1a～1d 絶縁性基板
- 11 切欠き部
- 21 リード
- 21a～21f 対極用のリード

*22 電極

221 作用極

222a～222d 対極

23 接続端子

231 作用極の接続端子

232, 232a, 232b 対極の接続端子

3 反応層

4 スペーサ

5 絶縁層

6 空間部

61 導入口

62 排出口

7 貫通孔

7a 電極形成物質内在による電極兼用の貫通孔(作用極用)

7b, 7c リード形成物質内在によるリード兼用の貫通孔(対極用)

8 背面フィルム

10 バイオセンサ

20 91a シート(基板)

91b シート(カバーシート)

921 リード

922, 922a 電極

923 接続端子

94 絶縁層

95 反応層

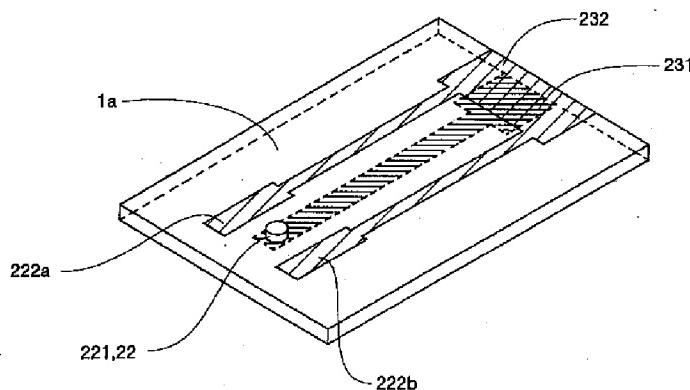
96 空間部

97 スペーサシート

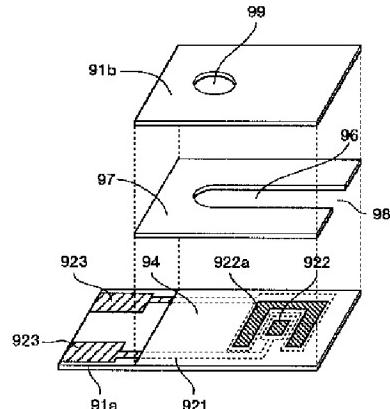
98 導入口

30 99 排出口

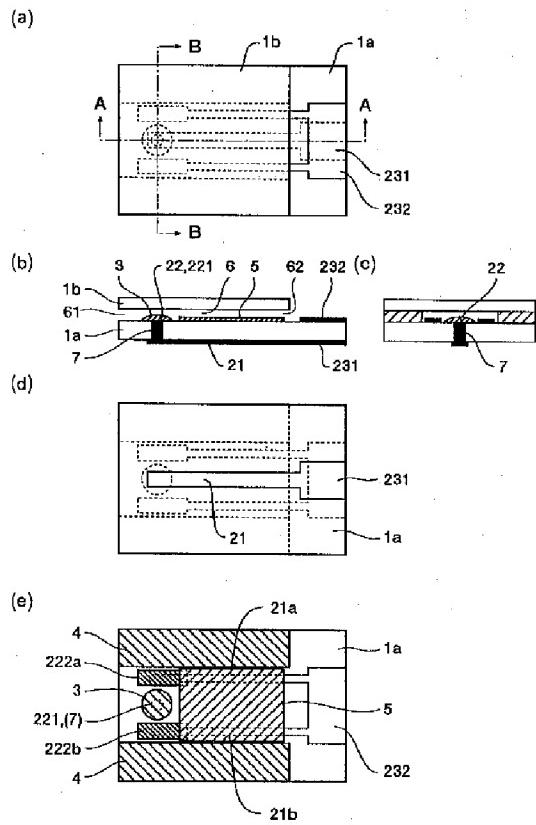
【図2】



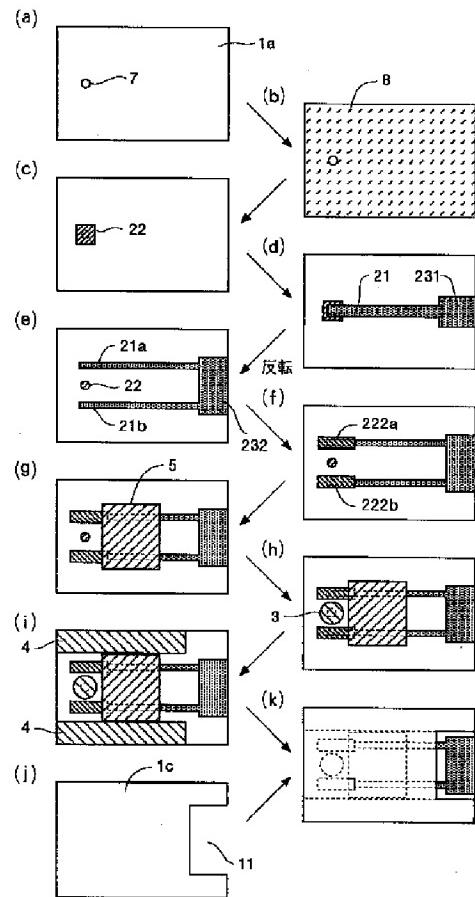
【図6】



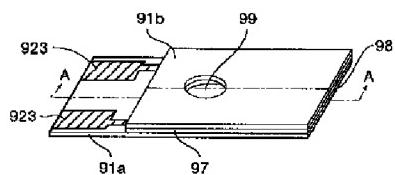
【図1】



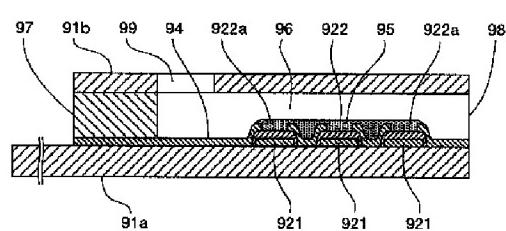
【図3】



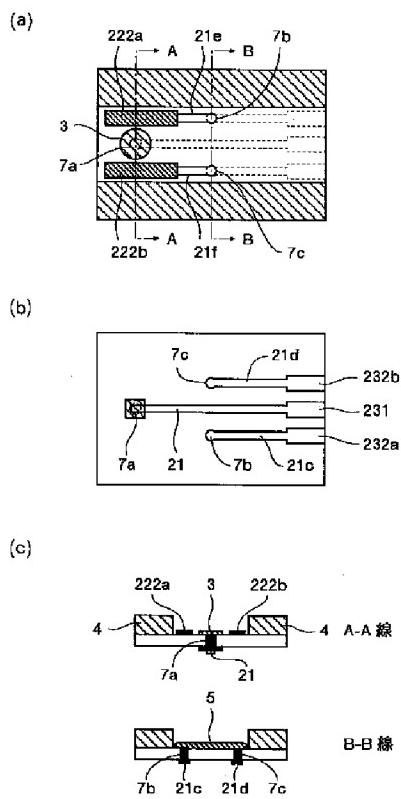
【図7】



【図8】



【図4】



【図5】

